

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

PCT/JP.03/00133	
REC'D 07 MAR 2003	
WIPO	PCT
09.01.03	

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年 1月11日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-005381

[ST.10/C]:

[JP2002-005381]

出 願 人

Applicant(s):

御国色素株式会社

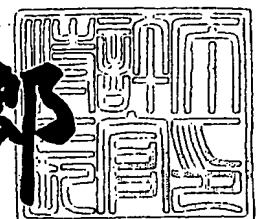
**PRIORITY  
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1 (a) OR (b)

2003年 2月18日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田 信一郎



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2003-3008099

【書類名】 特許願

【整理番号】 39109-2

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C01B 31/04  
H01M 8/00

【発明者】

    【住所又は居所】 兵庫県姫路市御国野町国分寺 1 3 8 - 1 御国色素株式会社内

    【氏名】 久 英之

【発明者】

    【住所又は居所】 兵庫県姫路市御国野町国分寺 1 3 8 - 1 御国色素株式会社内

    【氏名】 高濱 順一

【発明者】

    【住所又は居所】 兵庫県姫路市御国野町国分寺 1 3 8 - 1 御国色素株式会社内

    【氏名】 門脇 徹治

【特許出願人】

    【識別番号】 591064508

    【氏名又は名称】 御国色素株式会社

    【代表者】 黒田 さとみ

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 143422

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池用炭素質材料及びこれを含有する分散液

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

炭素質材料の水分散液に、撥水性物質を有機溶剤に溶解した溶液を滴下して撥水処理を施して成る燃料電池用炭素質材料。

【請求項 2】

炭素質材料がカーボンプラック、黒鉛、炭素繊維のうち一種以上である請求項 2 記載の燃料電池用炭素質材料。

【請求項 3】

撥水性物質がフッ素樹脂、ケイ素樹脂、シランカップリング剤、及びワックスのうち一種以上である請求項 1 又は 2 に記載の燃料電池用炭素質材料。

【請求項 4】

請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の燃料電池用炭素質材料を含有する分散液。

【請求項 5】

請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の燃料電池用炭素質材料に触媒成分を担持してなる燃料電池用電極用材料。

【請求項 6】

請求項 5 記載の燃料電池用電極用材料を含有する燃料電池用電極。

【請求項 7】

請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の燃料電池用炭素質材料をバインダー樹脂と配合して多孔質材料に含浸してなる燃料電池用ガス拡散層。

【請求項 8】

請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の燃料電池用炭素質材料を、熱硬化性樹脂と配合して成形してなる燃料電池用セパレーター。

【請求項 9】

請求項 4 記載の分散液をバインダー樹脂と配合し、多孔質材料に含浸することを特徴とする燃料電池用ガス拡散層の製造方法。

【請求項 10】

請求項 4 記載の分散液を熱硬化性樹脂と配合して成形することを特徴とする燃料電池用セパレーター。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は導電性と撥水性を兼ね備えた炭素質材料、並びにこれを用いた固体高分子型、リン酸型などの燃料電池用電極のガス拡散層、触媒層、セパレーター及びその製造に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

従来から、燃料の有する化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換する装置として、燃料電池が知られている。この燃料電池は、一般的に、多孔質材料を使用した一对の電極、すなわち燃料極（アノード極）と酸化剤極（カソード極）との間に、電解質を保持する電解質層を挟み、燃料極の背面に反応ガスとして燃料ガスを接触させることにより、このときに生じる電気化学的反応を利用して、上記各電極間から電気エネルギーを取り出すように構成した装置である。

【0003】

燃料極は、水素から電子を引き抜く触媒と、燃料である水素のガス拡散層と、集電体としてのセパレータが積層された構造である。また酸化剤極は、プロトンと酸素の反応触媒と、空気の拡散層と、セパレータが積層された構造である。電解質としてスルホン酸系のプロトン伝導性の固体高分子膜（電解質膜）を用いた固体高分子型の燃料電池が、低温での使用について実用化が有望視されている。

【0004】

ここで、カソード極での、 $\frac{1}{2}\text{O}_2 + 2\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2\text{O}$  の反応で発生した水分を速やかに除去するために、電極部材には導電性のみならず撥水性をも付与する必要がある。例えばガス拡散層の製法としては、カーボンペーパーまたはカーボン繊維体から成る多孔質の材料に、カーボンブラックや黒鉛などの導電材料と、バインダー兼撥水剤としてのフッ素樹脂とを混合して塗布することで導電性と撥水性を両立させた層を形成する方法が知られている（特開平 10-261

， 4 2 1 号公報、特開 2 0 0 1 - 4 3 ， 8 6 5 号公報等）。触媒層は、カーボン粒子等の炭素質材料に白金、ルテニウム等の触媒物質を担持し、バインダー樹脂と混合して電解質膜上に塗布して形成するか、ガス拡散層上に形成した後に電解質膜とホットプレスする等の方法で形成される（特開平 7 - 2 1 1 ， 3 2 4 号公報、特開平 8 - 1 3 8 ， 6 8 3 号公報等）。

#### 【 0 0 0 5 】

また、導電性粒子と、テトラフルオロエチレンのような撥水性の材料とから成る層上に触媒担持カーボンブラックからなる層を形成しこれと高分子固体電解質とで接合体を形成する方法も知られている（特開平 7 - 2 9 6 ， 8 1 8 号公報等）。

セパレータとしては黒鉛シートのプレス成形によるもの、炭素焼結体に樹脂を含浸させた樹脂含浸材、ガラス状カーボン、エポキシ樹脂等の熱硬化性樹脂に、カーボンブラックや黒鉛等の炭素質材料を配合してなるもの等が知られている（特開昭 5 8 - 5 3 ， 1 6 7 号公報、特開昭 6 0 - 3 7 ， 6 7 0 号公報、特開昭 6 0 - 2 4 6 ， 5 6 8 号公報、特開 2 0 0 0 - 2 3 9 ， 4 8 8 号公報等）。

#### 【 0 0 0 6 】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記のような公知の方法でガス拡散層を形成した場合、撥水剤量が多いと電気的な抵抗値が上がり十分な導電性を保てない。逆に、撥水剤量が少ないと、十分な撥水性を得る事ができずに、ガスの透過の妨げとなり、結果として電池性能の低下を引き起こしていた。

#### 【 0 0 0 7 】

触媒層、セパレーターにしても同様の事がいえる。触媒層は多量の水分が触媒の周りを覆う事により、触媒機能が低下する。また、セパレーターは通常はガスを通させるための溝を形成させるが、セパレーター溝の撥水性が悪いと、水が付着してガス流路が閉鎖するとともに、空気極と電解質との境界にできる水分を除去しなければ、この水分が邪魔をした部分で空気極の反応が進まなくなり、結果として電池性能の低下を引き起こしていた。

#### 【 0 0 0 8 】

燃料電池用の導電材料として用いるために、炭素質材料のような導電性の材料に撥水化处理を施す試みは従来より行われている。例えば、特開 2 0 0 0 - 2 3 9 , 7 0 4 号公報には、カーボンブラック、カーボンペーパー、グラファイト、ニッケル粉末、スポンジ状チタンといった導電性の材料を、エタノールの存在下に、各種のシランカップリング剤と混合したり、環状シリコンオイルに分散した上で各種のシランカップリング剤と混合し、撥水化处理を行っている。そして、得られた被処理物の重量変化、拡散反射法による赤外吸収スペクトルから撥水膜が微粒子表面に化学結合した化学吸着単分子膜である、としている。

## 【 0 0 0 9 】

また、特開平 6 - 2 5 6 , 0 0 8 号公報では、カーボン粒子を 3 5 0 ~ 6 0 0 °C で 1 分 ~ 6 時間フッ素と反応させることによりフッ化カーボン粒子を得ること、これを燃料電池等の電池材料として用いることが記載されている。

## 【 0 0 1 0 】

しかしながら、特開 2 0 0 0 - 2 3 9 , 7 0 4 号公報記載の方法の場合、カーボンブラック等の炭素質材料をアルコールや液状シリコンに分散して撥水処理を行っているが、カーボンブラックは極めて凝集しやすい材料であり、カーボンブラック粒子の一粒一粒を撥水処理することは勿論、比較的微細な分散状態で処理すること自体が非常に困難である。たとえフッ化シラン化合物の膜が単分子膜の状態で被覆していたとしても、カーボンブラック自体が凝集した状態では、均一な処理を行うことができない。また、この方法では、撥水性の物質としては、カーボンブラックの表面の官能基と結合し得る、アルコキシ基等の官能基を有するシランカップリング剤のような特定の物質に限定されてしまう。

## 【 0 0 1 1 】

一方、特開平 6 - 2 5 6 , 0 0 8 号公報記載の方法では、メソカーボン、マイクロビーズ、サーマルブラック等のカーボン粒子とフッ素との接触は、反応器内でニッケル製のボートにカーボン粒子を入れた状態で行われているものであるが、やはり、撥水化剤として用いることのできる物質は反応器に流通させてボート内のカーボン粒子と接触し得る、気体あるいは比較的低温で気化し得る物質に限定されてしまい、極めて狭い選択肢となってしまう。

## 【0012】

本発明は、できる限り少量の撥水剤量にて十分でかつ長期間にわたる撥水性能と導電性能を両立させる燃料電池用導電材料を提供することを目的とするものである。

## 【0013】

## 【課題を解決するための手段】

本発明者らは上記の課題に鑑みて鋭意検討を行った。その結果、炭素質材料に特定の方法で撥水化処理を施して得られた材料は、燃料電池用材料として撥水性、導電性の要求特性を兼ね備えるという優れた特定を有することを見出して本発明に到達した。すなわち、本発明は、

## 【0014】

(1) 炭素質材料の水分散液に、撥水性物質を有機溶剤に溶解した溶液を滴下して撥水処理を施して成る燃料電池用炭素質材料、

(2) 炭素質材料がカーボンブラック、黒鉛、炭素繊維のうち一種以上である上記(1)記載の燃料電池用炭素質材料、

(3) 撥水性物質がフッ素樹脂、ケイ素樹脂、シランカップリング剤、及びワックスのうち一種以上である上記(1)又は(2)に記載の燃料電池用炭素質材料、

## 【0015】

(4) 上記(1)～(3)のいずれかに記載の燃料電池用炭素質材料を含有する分散液、

(5) 上記(1)～(3)のいずれかに記載の燃料電池用炭素質材料に触媒成分を担持してなる燃料電池用電極用材料、

(6) 上記(5)記載の燃料電池用電極用材料を含有する燃料電池用電極、

## 【0016】

(7) 上記(1)～(3)のいずれかに記載の燃料電池用炭素質材料をバインダー樹脂と配合して多孔質材料に含浸してなる燃料電池用ガス拡散層、

(8) 上記(1)～(3)のいずれかに記載の燃料電池用炭素質材料を、熱硬化性樹脂と配合して成形してなる燃料電池用セパレーター、

(9) 上記(4)記載の分散液をバインダー樹脂と配合し、多孔質材料に含浸することを特徴とする燃料電池用ガス拡散層の製造方法、

【0017】

(10) 上記(4)記載の分散液を熱硬化性樹脂と配合して成形することを特徴とする燃料電池用セパレーター、  
に存する。

【0018】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳細に説明する。

〔炭素質材料〕

本発明で用いる炭素質材料としては、導電性を有する炭素質材料であれば特に制限されない。好ましくは、耐蝕性及び導電性の高い材料、例えばアセチレンブラック、ファーネスブラック、チャンネルブラック、ケッチェンブラックなどのカーボンブラック、黒鉛、活性炭、カーボン繊維、カーボンナノチューブなどが挙げられる。これらの炭素質材料を一種、又は二種以上使用してもよい。

【0019】

これらの炭素質材料のうち、特に好ましくは高比表面積や高ストラクチャーを有した導電性カーボンブラックを用いる。これは、特に高い導電性を有し、且つ十分に微細な粒子であることから他の成分例えばバインダー樹脂等に微分散して均一な物性を付与できること、またカーボンペーパー等の多孔質材料の微細な空隙を充填するために好都合なためである。

導電性カーボンブラックの中でも特に、熱処理して結晶子を発達させた黒鉛化カーボンブラックを用いることにより、より一層の高い導電性と、バインダー樹脂等のマトリクス成分への優れた分散性を得ることができる。

【0020】

炭素質材料の比表面積は限定されないが、通常、 $10 \sim 1500 \text{ m}^2/\text{g}$ 、好ましくは $10 \sim 500 \text{ m}^2/\text{g}$ の範囲から選択することにより微細な空隙への充填、導電面積の確保を図ることができる。炭素質材料の粒径も限定されないが、一般的には平均一次粒子径として $0.01 \sim 1 \mu\text{m}$ 、好ましくは $0.01 \sim 0.2$



μ m程度である。

#### 【0021】

##### 〔撥水化处理〕

上述した炭素質材料を、撥水性物質で表面处理して撥水性を付与する。撥水处理は、まず炭素質材料の水分散液を用意し、撥水性物質の有機溶媒溶液をここに滴下して炭素質材料を有機溶媒相に移行させる、いわゆるフラッシングを利用する方法で処理を行う。この方法によれば、微細な分散が困難な小粒子径の炭素質材料を予め水中で微分散しているため撥水性物質での処理が均一に行える。また、有機溶媒を適宜選択することにより、ここに溶解又は均一分散可能な撥水性物質であればいずれも使用可能であることから、撥水性物質の選択肢が大きく広がる。このため、例えば、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）のような、炭素質材料と反応し得る官能基を有さない物質を用いて撥水处理を行うこともでき、少量でも撥水効果の高い物質を選択することで導電性を維持しつつ撥水性を付与した導電材料を提供できる。

#### 【0022】

##### 〔撥水性物質〕

撥水性物質としては、撥水性の高い材料、例えばPTFE（ポリテトラフルオロエチレン）、FEP（フッ化エチレンポリプロピレンコポリマー）、PFA（テトラフルオロエチレンーパーフルオロアルキルビニルエーテルコポリマー）、ETFE（エチレン・テトラフルオロエチレン共重合体）、PCTFE（ポリクロロトリフルオロエチレン）、PVDF（ポリフッ化ビニリデン）、E-CFTE（三フッ化塩化エチレンーエチレンコポリマー）などのフッ素樹脂、ケイ素樹脂、シランカップリング剤、ワックスが挙げられるが、特に撥水効果が高いPTFEが好ましい。

#### 【0023】

好ましくは、処理後に除去が容易な有機溶媒を用い、ここに溶解又は均一に分散可能な撥水性物質を選択すれば良い。有機溶媒としては例えば、トルエン、キシレン、テトラヒドロフラン、n-ヘキサノンなど、水に難可溶なものが挙げられる。また、これらの有機溶媒に溶解又は均一に分散可能な撥水性物質としては

、フッ素樹脂、シリコン樹脂等が挙げられる。

【 0 0 2 4 】

炭素質材料と撥水性物質との量比は、所望する撥水性の程度に応じて適宜選択すれば良いが、一般には、炭素質材料 1 0 0 重量部に対して撥水性物質 0. 5 重量部～1 5 重量部の範囲、特に好ましくは炭素質材料 1 0 0 重量部に対して撥水性物質 1 重量部～1 0 重量部の範囲である。この範囲で特に撥水性と導電性のバランスに優れている。炭素質材料 1 0 0 重量部に対して撥水性物質が 0. 5 部未満では撥水性が十分でない傾向にある。一方、1 5 重量部を超えると導電性が十分でないことがある。

【 0 0 2 5 】

以上説明したように炭素質材料を特定の方法で撥水性物質で処理して撥水性を付与することにより、導電性と撥水性のバランスの取れた導電性炭素材料を得ることができる。この、本発明の炭素質材料に、バインダー的役割を持たせるための撥水剤、水又は有機溶剤と任意の割合で混合し、カーボンペーパー、カーボン繊維体等から成る多孔質材料に含浸する事で燃料電池用電極のガス拡散層を得る事ができる。

【 0 0 2 6 】

ここで用いることのできる有機溶剤、撥水剤は特に限定されず、従来より燃料電池用ガス拡散層を形成する際に用いられているものを適宜、使用すれば良い。具体的には、バインダー的役割を持たせるための撥水剤としては例えば、その撥水性、結着性の優れている点からフッ素樹脂が好ましく、より具体的には F E P、P T F E、E T F E、パーフルオロスルホン酸樹脂の他、カルボキシル基や水酸基を付与したりグラフト処理して有機溶剤への溶解性を付与した溶剤可溶型フッ素樹脂（旭硝子（株）製「ルミフロン L F 1 0 0」、「ルミフロン L F 2 0 0」、「ルミフロン L F 3 0 2」、「ルミフロン L F 4 0 0」、「ルミフロン L F 5 5 4」、「ルミフロン L F 6 0 0」、セントラル硝子（株）製「セフラルコート A 1 0 1 E」、「セフラルコート A 2 0 2 B」、「セフラルコート A 4 0 2 B」、「セフラルコート A 6 1 0 X」、「セフラルコート A 6 7 0 X」、「セフラルコート A 6 8 0 X S」、「セフラルコート W S 2 5 0」（水系）、「セフラル

コートFG700X」(グラフト処理品))等の溶剤可溶型フッ素樹脂等が挙げられる。また、本発明の炭素質材料、撥水剤、水又は有機溶剤の割合も特に限定されず、含浸作業に適した物性に調整すれば良い。

【0027】

この際、必要に応じて適宜、界面活性剤、樹脂などを分散剤として使用しても良い。カーボンペーパー、カーボン繊維体は空隙部が多く、面方向の導電性は高いが厚み方向の導電性は面方向に比べて低いものであるため、空隙部に本発明の炭素質材料を充填させることで、導電性を安定させる目的も達成できる。

また、本発明の燃料電池用炭素質材料を、予め有機溶媒あるいは水性媒体(乾燥により除去できるものが望ましく、例えば見ず、エタノール、プロピルアルコールなどのアルコール類、ベンゼン、トルエンなどのハイドロカーボン、アセテート、エーテル、ラクトン、アミン、アミド、ハロゲン化アルキルなどが挙げられる)に分散した分散液としておき、これをバインダー樹脂と配合して多孔質材料に含浸する方法を採ることもできる。このようにすれば、炭素質材料のバインダー樹脂への微分散が比較的容易に可能である。

【0028】

本発明の導電性と撥水性を兼ね備えた燃料電池用炭素質材料は単独使用しても撥水効果を発揮できるため、さらに別個に撥水剤を添加しなくとも良く、本発明の炭素質材料と、撥水効果を有さないバインダー樹脂とを、水又は有機溶剤と任意の割合で混合し、カーボンペーパー、カーボン繊維体等の多孔質材料に含浸して燃料電池用電極のガス拡散層を得る事ができる。

【0029】

この場合には、バインダー樹脂としては撥水剤としても用いられるもの以外の、固着力の強いアクリル系、ウレタン系、エポキシ系、ポリエステル系など公知のバインダー樹脂を少量使用すれば良いことから、多孔質材料に強固に固着させる事も可能であり、導電材料としての炭素質材料の充填率を増加させることが可能である。

この場合も必要に応じて界面活性剤、樹脂などを分散剤として使用しても良く、カーボンペーパー、カーボン繊維体等の多孔質材料の空隙部に本発明の炭素質材

料を充填させることで、導電性を安定させる目的も達成できる。

#### 【0030】

本発明の導電性と撥水性を兼ね備えた炭素質材料を公知の方法にて、白金、ルテニウム等の触媒物質を担持させることにより撥水性触媒として使用することができる。白金等の触媒物質を担持させた本発明の燃料電池用炭素質材料に、バインダー樹脂、水又は有機溶剤を任意の割合で混合し、カーボンペーパー、カーボン繊維体等の多孔質材料に含浸塗布する事で燃料電池用触媒層を得る事ができる。必要に応じて界面活性剤、樹脂などを分散剤として使用しても良い。本発明の燃料電池用炭素質材料は単独使用でも撥水効果を有するため、バインダー樹脂としては撥水効果を有するもの以外にも、アクリル系などの公知のバインダー樹脂を使用することができる。

#### 【0031】

本発明の燃料電池用炭素質材料を、例えば特開2000-239, 488号公報に記載されているように、熱硬化性樹脂と配合して成形することにより、撥水性を備えた燃料電池用セパレーターを得る事ができる。

#### 【0032】

##### 【実施例】

##### （実施例1～4）

炭素質材料として、表-1に物性を示す市販のカーボンブラックAを用い、撥水性物質として、溶剤可溶型フッ素樹脂（「ルミフロンLF200」、旭硝子（株）製）をトルエンに分散した分散液（以下「フッ素樹脂分散液」という）を用い、表-2に示す配合比率（炭素質材料と溶解性フッ素樹脂との固形分換算）で、以下の操作を行った。

#### 【0033】

カーボンブラックAをイオン交換水に2.5重量%となるよう添加し、ホモミキサーで9000rpm、30分、分散した。この液を攪拌しながら「フッ素樹脂分散液」を滴下して撥水处理した。

トルエン溶液滴下後数分攪拌してから200メッシュでメッシュ濾過した。メッシュ濾過後、一晚常温乾燥した後80℃の真空乾燥機で乾燥し、撥水化炭素質材

料を得た。

【0034】

【表1】

表-1

	カーボンブラックA	カーボンブラックB	カーボンブラックC
平均粒子径(nm)	50	48	30
比表面積(m <sup>2</sup> /g)	38	39	254
DBP吸油量(cc/100g)	169	140	174
1500℃でのH <sub>2</sub> 量(mg/g)	0.03	0.31	1.59
5μ以上粗粒分(ppm)	350	105	540
吸着水分量(mg/m <sup>2</sup> )	$3.5 \times 10^{-3}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$8.9 \times 10^{-2}$

【0035】

表-1中、5μm以上粗粒分(5μmフィルター残)は、ノニオン系分散剤(例えば、ニッサン(株)製「NS220」)を5%溶解した純水400ml中にカーボンブラック20gをホモジナイザー4000rpmで30分間分散させる。この分散液をまず、孔径5μmのナイロン製フィルターで同様に濾過し、フィルター上の残渣を秤量して算出した。

【0036】

1500℃のH<sub>2</sub>量は、105℃で1時間乾燥したカーボンブラック0.1~0.5gを耐熱製の磁製サンプル管に入れ、10<sup>-5</sup>トール以下まで減圧した後、1500℃に昇温してある電気炉で30分間加熱し、脱離してきたガスをクロマトグラフィーで分析してH<sub>2</sub>量を定量した。

【0037】

吸着水分量は、単位比表面積当たりの相対圧(P/P<sub>0</sub>)0.4における値であり、コールター・クオリティー・カウンター社製の「オムニソープ100CX」を用い「コールター・オムニソープ・オペレーターズ・ガイド(1991年2月発行)」に記載されている条件で測定した。ただし、カーボンブラックの前処理は、10<sup>-5</sup>トール以下の真空状態で300℃で3時間実施した。

平均粒子径は電子顕微鏡による算術平均径、比表面積は低温窒素吸着法(JIS K6217による)による値、DBP吸油量はASTM D-3493-88による値である。

## 【 0 0 3 8 】

得られた撥水化炭素質材料について、以下の評価試験を行った。

## (撥水性試験)

試料 0. 1 g とイオン交換水 1 0 g をサンプル瓶に入れ、ふたをして良く振った後の状態を、以下の基準により目視で判断して評価する。

## 【 0 0 3 9 】

## &lt;撥水性の基準&gt;

第 1 段階：試料の浮遊状態…大部分浮遊しているものを、撥水性が高いものと判断する。

第 2 段階：液のにごり…にごりなしのものを、撥水性が高いものと判断する。

この 2 点で撥水性を○△×で評価する。結果を表-3 に示す。

## 【 0 0 4 0 】

## (導電性試験)

試料の粉体抵抗を三菱化学(株)製「ロレスタ PA」を用いて測定した。温度は常温、加重  $16 \text{ kg/cm}^2$  で行った。結果を表-3 に示す。フッ素樹脂で撥水処理しても粉体抵抗は処理前と同じオーダーの数値にとどまっていることがわかる。

## 【 0 0 4 1 】

## (実施例 5、6)

炭素質材料としてカーボンプラック A に代えて市販のカーボンプラック B (表-1 に物性を示す) を用いた以外は、実施例 1 ~ 4 と同様の操作を行い、撥水化炭素質材料を得た。評価試験結果を、表-3 に示す。

## 【 0 0 4 2 】

## (実施例 7、8)

炭素質材料としてカーボンプラック A に代えて市販のカーボンプラック C (表-1 に物性を示す) を用いた以外は、実施例 1 ~ 4 と同様の操作を行い、撥水化炭素質材料を得た。評価試験結果を、表-3 に示す。

## 【 0 0 4 3 】

## (比較例 1)

撥水处理をしていないカーボンブラック A についての評価試験結果を表-3 に示す。

【0044】

(比較例 2)

撥水处理をしていないカーボンブラック B についての評価試験結果を表-3 に示す。

【0045】

(比較例 3)

撥水处理をしていないカーボンブラック C についての評価試験結果を表-3 に示す。

【0046】

【表 2】

表-2

	炭素質材料	量比(炭素質材料/ 撥水性物質)
実施例1	カーボンブラックA	99/1
実施例2	カーボンブラックA	98/2
実施例3	カーボンブラックA	95/5
実施例4	カーボンブラックA	90/10
実施例5	カーボンブラックB	95/5
実施例6	カーボンブラックB	90/10
実施例7	カーボンブラックC	95/5
実施例8	カーボンブラックC	90/10
比較例1	カーボンブラックA	100/0
比較例2	カーボンブラックB	100/0
比較例3	カーボンブラックC	100/0

【0047】

【表 3】

表-3

	使用炭素質材料	撥水性試験			導電性試験
		浮遊状態	液のにごり	撥水性評価	粉体抵抗( $\Omega$ cm)
実施例 1	カーボンブラック A	大部分浮遊	にごりあり	○	0.492
実施例 2	カーボンブラック A	大部分浮遊	にごりあり	○	0.493
実施例 3	カーボンブラック A	大部分浮遊	にごりなし	◎	0.623
実施例 4	カーボンブラック A	大部分浮遊	にごりなし	◎	0.819
比較例 1	カーボンブラック A	浮遊なし	にごりあり	△	0.311
実施例 5	カーボンブラック B	大部分浮遊	にごりあり	○	0.672
実施例 6	カーボンブラック B	大部分浮遊	にごりなし	○～◎	0.867
比較例 2	カーボンブラック B	1 部浮遊	にごりあり	△～×	0.259
実施例 7	カーボンブラック C	大部分浮遊	にごりあり	△	0.536
実施例 8	カーボンブラック C	大部分浮遊	にごりなし	○	0.624
比較例 3	カーボンブラック C	1 部浮遊	にごりあり	×	0.339

## 【発明の効果】

## 【0048】

本発明の撥水化処理した炭素質材料は、極微細な粒子状態に分散した炭素質材料の表面に撥水処理を施していることから、撥水性物質の寄与する表面積が大きく、少量で撥水効果を発揮していると考えられる。また、フラッシング処理を用いることにより、幅広い選択肢の撥水性物質の使用が可能であり、少量で高い撥水効果を有する物質を用いることで撥水性を付与しつつ高い導電性を保つことが可能である。

## 【0049】

本発明の導電性と撥水性を兼ね備えた炭素質材料を燃料電池用ガス拡散層に使用した場合には、バインダー兼撥水剤として使用していた撥水剤の使用量を大幅に低減させることが可能である。このためにガス拡散層の電気的な抵抗値を大幅に下げる事が可能となり、電池性能を向上させることが期待できる。

## 【0050】

また、本発明の導電性と撥水性を兼ね備えた炭素質材料に白金等の触媒物質を担持させて触媒成分として使用した場合、バインダー兼撥水剤として使用していた撥水剤の使用量を大幅に低減させる事が可能となり、電気的な抵抗値を大幅に下げる事が可能となり、電池性能を向上させることが期待できる。



【 0 0 5 1 】

また、本発明の導電性と撥水性を兼ね備えた炭素質材料は単独使用においても撥水性を持ち合わせていることより、撥水剤以外のバインダー樹脂で固着させてガス拡散層を得ることができる。

【 0 0 5 2 】

また、セパレーター用途に使用した場合、熱硬化性樹脂等のセパレーター材料樹脂と混合し、導電性と撥水性とを両立して発揮させる事が可能である。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料電池用材料として撥水性、導電性の要求特性を兼ね備える炭素質材料を得る。

【解決手段】 炭素質材料の水分散液に、撥水性物質を有機溶剤に溶解した溶液を滴下して撥水处理を施して成る燃料電池用炭素質材料。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2002-005381
受付番号	50200033940
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成14年 1月15日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成14年 1月11日
-------	-------------

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [591064508]

1. 変更年月日 1991年 4月 1日

[変更理由] 新規登録

住 所 兵庫県姫路市御国野町国分寺138-1

氏 名 御国色素株式会社